

Rec'd PCT/PTO 16 MAY 2005

PATENT COOPERATION TREATY

PCT/EP2003/012535



534973

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference O.Z. 6147-WO	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP2003/012535	International filing date (day/month/year) 11 November 2003 (11.11.2003)	Priority date (day/month/year) 24 December 2002 (24.12.2002)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C07C 29/04		
Applicant OXENO OLEFINCHEMIE GMBH		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of 5 sheets, including this cover sheet.

This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 2 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I  Basis of the report
- II  Priority
- III  Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV  Lack of unity of invention
- V  Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI  Certain documents cited
- VII  Certain defects in the international application
- VIII  Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 10 April 2004 (10.04.2004)	Date of completion of this report 03 February 2005 (03.02.2005)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP2003/012535

## I. Basis of the report

## 1. With regard to the elements of the international application:\*

the international application as originally filed

the description:

pages \_\_\_\_\_ 1-17 \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_ \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_ , filed with the letter of \_\_\_\_\_

the claims:

pages \_\_\_\_\_ 1-10 \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_ \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
 pages \_\_\_\_\_ \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_ , filed with the letter of \_\_\_\_\_

the drawings:

pages \_\_\_\_\_ 1/3-3/3 \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_ \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_ , filed with the letter of \_\_\_\_\_

the sequence listing part of the description:

pages \_\_\_\_\_ \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_ \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_ , filed with the letter of \_\_\_\_\_

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item. These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).  
 the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).  
 the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

contained in the international application in written form.  
 filed together with the international application in computer readable form.  
 furnished subsequently to this Authority in written form.  
 furnished subsequently to this Authority in computer readable form.  
 The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.  
 The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4.  The amendments have resulted in the cancellation of:

the description, pages \_\_\_\_\_  
 the claims, Nos. \_\_\_\_\_  
 the drawings, sheets/fig. \_\_\_\_\_

5.  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 03/12535

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

## 1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	1-10	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO

## 2. Citations and explanations

Document D1: US-A-5 358 560

The present invention relates to a method for producing tertiary butanol (TBA), wherein in a first stage the isobutene-containing C<sub>4</sub>-hydrocarbon stream and water are reacted with the addition of TBA and the mixture obtained in this way is fed into a reactive distillation column below the reaction zone.

**Novelty**

The subject matter of the application according to claims 1 to 10 is novel (PCT Article 33(2)). The method according to the application for producing TBA essentially differs from the closest prior art document D1 in that, according to the application, an isobutene-containing C<sub>4</sub>-hydrocarbon stream and water are reacted with the addition of TBA.

**Inventive step**

The subject matter of the application according to claims 1 to 10 appears not to be inventive (PCT Article 33(3)).

Proceeding from document D1 as the closest prior art, the

problem to be solved is understood to be that of making available an improved method for producing TBA, in particular a method which is characterized by an increased isobutene conversion.

According to claim 1 the above problem is solved by reacting the isobutene-containing C<sub>4</sub>-hydrocarbon mixture with water and added TBA and feeding the reacted mixture into the distillation column below the reaction zone.

However, there is doubt as to whether this problem was in fact solved. In none of the examples according to the invention TBA was actually added as claimed. Moreover, the stated increases in isobutene conversion do not result from a comparison with the closest prior art document D1. These results are therefore not used for the assessment with regard to inventive step.

Therefore, in the absence of the required advantageous results relative to document D1, no opinion with regard to inventive step can be established.

Further observations:

- a) In claim 4 the subject matter for which protection is sought is not defined clearly (PCT Article 6). The claim defines only the result to be obtained with the invention, and in so doing merely specifies the problem to be solved but not the technical features necessary to achieve this result.
- b) Claim 3 is not encompassed by the scope of protection of claim 1.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 03/12535

- c) Contrary to PCT Article 5.1(a)(ii), the description does not cite document D1 or indicate the relevant prior art disclosed therein.
- d) The description has not been brought into line with the claims.

## VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

REC'D 04 FEB 2005

WIPO

PCT

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT  
(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts O.Z. 6147-WO	<b>WEITERES VORGEHEN</b>	siehe Mitteilung über die Übersendung des Internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/16)
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/12535	Internationales Anmelde datum (Tag/Monat/Jahr) 11.11.2003	Prüfungsdatum (Tag/Monat/Jahr) 24.12.2002

Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK  
C07C29/04

Anmelder  
OXENO OLEFINCHEMIE GMBH et al.

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
  - Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 2 Blätter.
3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:
  - I  Grundlage des Bescheids
  - II  Priorität
  - III  Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erforderliche Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
  - IV  Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
  - V  Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erforderlichen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
  - VI  Bestimmte angeführte Unterlagen
  - VII  Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
  - VIII  Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 10.04.2004	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 03.02.2005
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Breimaier, W Tel. +49 89 2399-8327



**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

**Beschreibung, Seiten**

1-17 in der ursprünglich eingereichten Fassung

**Ansprüche, Nr.**

1-10 eingegangen am 11.11.2004 mit Schreiben vom 09.11.2004

**Zeichnungen, Blätter**

1/3-3/3 in der ursprünglich eingereichten Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- Beschreibung, Seiten:
- Ansprüche, Nr.:
- Zeichnungen, Blatt:

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER  
PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/12535

5.  Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

**V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche 1-10
	Nein: Ansprüche
Erfinderische Tätigkeit (IS)	Ja: Ansprüche
	Nein: Ansprüche 1-10
Gewerbliche Anwendbarkeit (IA)	Ja: Ansprüche 1-10
	Nein: Ansprüche:

2. Unterlagen und Erklärungen:

**siehe Beiblatt**

**Zu Punkt V**

**Begründete Feststellung hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

D1 : US-A 5 358 560

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von tert. Butanol (TBA), wobei zunächst in einer ersten Stufe der isobutenhaltige C<sub>4</sub>-Kohlenwasserstoffstrom und Wasser unter Zusatz von TBA zur Reaktion gebracht und das so erhaltene Gemisch unterhalb der Reaktionszone in eine Reaktivdestillationskolonne eingespeist wird.

**Neuheit**

Der Anmeldungsgegenstand gemäß den Ansprüchen 1 bis 10 ist neu (Art. 33(2) EPÜ). Das anmeldungsgemäße Verfahren zur Herstellung von TBA unterscheidet sich im wesentlichen von dem nächstliegenden Stand der Technik D1 dadurch, dass anmeldungsgemäß isobutenhaltiger C<sub>4</sub>-Kohlenwasserstoffstrom und Wasser **unter Zusatz von TBA** zur Reaktion gebracht wird.

**Erfinderische Tätigkeit**

Der Anmeldungsgegenstand gemäß den Ansprüchen 1 bis 10 scheint nicht erfinderisch zu sein (Art. 33(3) EPÜ).

Die ausgehend von D1 als nächstliegenden Stand der Technik zu lösende Aufgabe wird in der Bereitstellung eines **verbesserten Verfahrens** zur Herstellung von TBA, insbesondere eines Verfahrens, das sich durch einen erhöhten Isobuten-Umsatz auszeichnet, gesehen.

Die obengenannte Aufgabe wird gemäß Anspruch 1 dahingehend gelöst, dass das isobutenhaltige C<sub>4</sub>-Kohlenwasserstoffgemisch, Wasser und **zugesetztes TBA** zur Reaktion gebracht und unterhalb der Reaktionszone eingespeist wird.

Es ist jedoch zweifelhaft, ob diese Aufgabe tatsächlich gelöst wurde. In keinem der erfindungsgemäßen Beispielen wurde wie beansprucht TBA zugesetzt. Des Weiteren resultieren die ausgewiesenen erhöhten Isobuten-Umsätze nicht durch einen Vergleich gegenüber dem nächstliegenden Stand der Technik D1. Diese Ergebnisse sind deshalb zur Beurteilung der erfinderischen Tätigkeit nicht heranzuziehen.

In Abwesenheit der erforderlichen vorteilhaften Ergebnisse gegenüber D1 kann somit das Vorliegen erfinderischer Tätigkeit nicht beurteilt werden.

Weitere Bemerkungen:

- a. Im Anspruch 4 ist der Gegenstand des Schutzbegehrens nicht klar definiert (Art. 6 PCT). Im Anspruch wird lediglich das mit der Erfindung zu erreichende Ergebnis definiert; damit wird aber lediglich die zu lösende Aufgabe angegeben, ohne die für die Erzielung dieses Ergebnisses notwendigen technischen Merkmale zu bieten.
- b. Anspruch 3 wird von dem Schutzbegehren von Anspruch 1 nicht umfasst.
- c. Im Widerspruch zu den Erfordernissen der Regel 5.1 a) ii) PCT wird in der Beschreibung weder der in dem Dokument D1 offenbarte einschlägige Stand der Technik noch dieses Dokument angegeben.
- d. Die Beschreibung ist nicht an die Ansprüche angepasst.

**Patentansprüche:**

1. Verfahren zur Herstellung von tertiärem Butanol durch Umsetzung eines isobutenthaltigen C<sub>4</sub>-Kohlenwasserstoffstroms mit Wasser an einem festen sauren Katalysator,  
5 dadurch gekennzeichnet,  
dass in einer ersten Stufe der isobutenthaltige C<sub>4</sub>-Kohlenwasserstoffstrom und Wasser unter Zusatz von TBA in einem oder mehreren Reaktor/-en zur Reaktion gebracht werden und das erhaltene Gemisch unterhalb der Reaktionszone in eine Reaktivdestillationskolonne eingespeist wird.

10

2. Verfahren nach Anspruch 1,  
dadurch gekennzeichnet,  
dass ein isobutenthaltiger C<sub>4</sub>-Kohlenwasserstoffstrom, Wasser und tert.-Butanol in die Reaktivdestillationskolonne eingespeist werden.

15

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2,  
dadurch gekennzeichnet,  
dass zunächst ein isobutenthaltiger C<sub>4</sub>-Kohlenwasserstoffstrom mit Wasser an einem sauren festen Katalysator bis zu einem Isobuten-Umsatz von 65 bis 97 % zu tert.-Butanol umgesetzt und das so erhaltene Gemisch in die Reaktivdestillationskolonne eingespeist wird.

20

4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3,  
dadurch gekennzeichnet,  
25 dass als Kopfprodukt der Reaktivdestillationskolonne ein C<sub>4</sub>-Kohlenwasserstoffstrom mit einem Isobuten-Gehalt von weniger als 700 Massen-ppm abgezogen wird.

25

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4,  
dadurch gekennzeichnet,

dass das am Kopf der Reaktivdestillationskolonne erhaltene Gemisch in eine wässrige und eine organische Phase getrennt und die wässrige Phase in die Reaktivdestillationskolonne zurückgeführt wird.

5 6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5,  
dadurch gekennzeichnet,  
dass die Reaktivdestillationskolonne als Destillationskolonne mit einem oder mehreren  
äußenliegenden Reaktoren, die den Katalysator enthalten und im Nebenstrom betrieben  
werden, ausgeführt ist.

10 7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5,  
dadurch gekennzeichnet,  
dass die Reaktivdestillationskolonne als Destillationskolonne mit einem oder mehreren  
im Destillationsteil integrierten Reaktoren, die den Katalysator enthalten, ausgeführt ist.

15 8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7,  
dadurch gekennzeichnet,  
dass in die Reaktivdestillationskolonne ein homogenes, mit Wasser gesättigtes Gemisch  
eingespeist wird.

20 9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7,  
dadurch gekennzeichnet,  
dass in die Reaktivdestillationskolonne ein heterogenes Gemisch eingespeist wird.

25 10. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 9,  
dadurch gekennzeichnet,  
dass die Einspeisung des isobutenthaligen C<sub>4</sub>-Kohlenwasserstoffstroms und Wasser an  
verschiedenen Stellen der Reaktivdestillationskolonne erfolgt.